

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

011296642 \*\*Image available\*\*

WPI Acc No: 1997-274547/199725

XRAM Acc No: C97-088427

XRPX Acc No: N97-227381

**Polymer electrolyte membrane fuel cell - comprises at least one membrane electrode unit with conducting electrode layers, and distribution plates, with reliable operation**

Patent Assignee: DAIMLER-BENZ AG (DAIM ); BALLARD POWER SYSTEMS INC (BALL-N)

Inventor: ELIAS H; HARTMUT E

Number of Countries: 005 Number of Patents: 006

Patent Family:

Patent No	Kind	Date	Applicat No	Kind	Date	Week
EP 774794	A1	19970521	EP 96116632	A	19961017	199725 B
DE 19542475	A1	19970522	DE 1042475	A	19951115	199726
US 5928807	A	19990727	US 96751096	A	19961115	199936
DE 19542475	C2	19991028	DE 1042475	A	19951115	199949
EP 774794	B1	20000517	EP 96116632	A	19961017	200028
DE 59605237	G	20000621	DE 505237	A	19961017	200036
			EP 96116632	A	19961017	

Priority Applications (No Type Date): DE 1042475 A 19951115

Cited Patents: 4.Jnl.Ref; DE 19539959; DE 4442285; JP 1296569; JP 4012465; JP 5234606; JP 8045517; US 5292600; WO 9503638; WO 9516287; WO 9612316

Patent Details:

Patent No	Kind	Lan	Pg	Main IPC	Filing Notes
EP 774794	A1	G	8	H01M-008/02	
Designated States (Regional): DE FR GB IT					
DE 19542475	A1			H01M-008/02	
US 5928807	A			H01M-008/02	
DE 19542475	C2			H01M-008/02	
EP 774794	B1	G		H01M-008/02	
Designated States (Regional): DE FR GB IT					
DE 59605237	G			H01M-008/02	Based on patent EP 774794

Abstract (Basic): EP 774794 A

The polymer electrolyte membrane fuel cell comprises at least one membrane electrode unit which has conducting electrode layers on opposite sides, distribution plates made of an elastic, plastic deformable material and integrated channels for the removal reaction and/or coolant media. A seal is located between the distribution plates and the membrane electrodes to seal off the individual gas and liquid chambers. The seal (14) is formed by integrated raised areas (16) in the distribution plates.

ADVANTAGE - The fuel cell is simple to produce and is reliable in operation.

Dwg.1/3

Title Terms: POLYMER; ELECTROLYTIC; MEMBRANE; FUEL; CELL; COMPRISE; ONE; MEMBRANE; ELECTRODE; UNIT; CONDUCTING; ELECTRODE; LAYER; DISTRIBUTE; PLATE; RELIABILITY; OPERATE

Derwent Class: A85; L03; X16

International Patent Class (Main): H01M-008/02

International Patent Class (Additional): H01M-002/08

File Segment: CPI; EPI



⑬ BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENTAMT

⑫ Off nl gungsschrift  
⑩ DE 195 42 475 A 1

⑤ Int. Cl.<sup>8</sup>:  
H 01 M 8/02  
H 01 M 2/08

②① Aktenzeichen: 195 42 475.1  
②② Anmeldetag: 15. 11. 95  
②③ Offenlegungstag: 22. 5. 97

DE 195 42 475 A 1

⑦① Anmelder:

Daimler-Benz Aktiengesellschaft, 70567 Stuttgart,  
DE

⑦② Erfinder:

Elias, Hartmut, Dipl.-Phys., 88709 Meersburg, DE

⑤⑥ Entgegenhaltungen:

DE	43 14 745 C1
DE	35 26 614 C2
US	52 84 718 A

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

⑤④ Integrierte Dichtung für eine PEM-Brennstoffzelle

⑤⑦ Die Erfindung betrifft eine Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle mit Verteilerplatten aus einem elastischen, plastisch verformbaren Material, insbesondere aus Graphitfolie, die integrierte Gas- beziehungsweise Flüssigkeitskanäle aufweisen. Um die einzelnen Gas- beziehungsweise Flüssigkeitsräume auf einfache und preiswerte Weise gegeneinander abzudichten, wird vorgeschlagen, in die Verteilerplatten aus einem elastischen, plastisch verformbaren Material integrierte Erhebungen vorzusehen. Solche Verteilerplatten mit integrierter Dichtung können auf einfache Weise durch einen Prägevorgang hergestellt werden, wobei das verwendete Prägewerkzeug entsprechende Erhebungen zur Ausbildung der Gas- beziehungsweise Flüssigkeitskanäle und entsprechende Vertiefungen zur Ausbildung der Dichtungsanordnung aufweist.

DE 195 42 475 A 1

Die Erfindung betrifft eine Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzelle mit Verteilerplatten aus einem elastischen, plastisch verformbaren und elektrisch leitfähigen Material gemäß dem Oberbegriff des Hauptanspruchs.

Brennstoffzellen bestehen im einfachsten Fall aus zwei elektrisch leitenden Elektroden, die durch eine ionenleitende Membran voneinander getrennt sind. Zur Zuführung der Reaktionsmedien werden Verteilerplatten mit integrierten Gas- beziehungsweise Flüssigkeitsführungs Kanälen verwendet. Um ein unkontrolliertes Austreten der Reaktionsmedien zu verhindern werden die einzelnen Gas- beziehungsweise Flüssigkeitsräume bei herkömmlichen Brennstoffzellen durch Dichtungen, die jeweils zwischen den Verteilerplatten und den Elektroden angeordnet sind, gegeneinander abgedichtet.

Bei Brennstoffzellen mit protonenleitender Polymerelektrolytmembran — sogenannten PEM-Brennstoffzellen, werden die Verteilerplatten aus Graphitmateriale hergestellt, wobei zwischen den Graphitmateriale und der Polymerelektrolytmembran Dichtungen aus einem Elastomermaterial vorgesehen sind. Für die Verteilerplatten können vorzugsweise elastische, plastisch verformbare und elektrisch leitfähige Materialien, insbesondere Graphitfolien mit einer spezifischen Dichte von 0,2—1,8 g/cm<sup>3</sup> verwendet werden. Eine solche Anordnung zeigt beispielsweise die US-PS 5,284,718.

Da die Verteilerplatten beziehungsweise die Elastomerdichtungen aus unterschiedlichen Materialien hergestellt sind und daher unterschiedliche thermomechanische Eigenschaften aufweisen kann es im Betrieb der PEM-Brennstoffzelle durch die Erwärmung der Brennstoffzelle aufgrund unterschiedlicher Ausdehnung der Materialien zu Undichtigkeiten kommen. Außerdem ist für die Herstellung, Montage und die exakte Justierung dieser Dichtungen ein erheblicher Aufwand notwendig.

Um dieses Problem zu lösen wurde in der DE 43 14 745 C1 bereits vorgeschlagen, alle wesentlichen Komponenten der PEM-Brennstoffzelle, also auch die Verteilerplatten, aus einem thermoplastischen Grundpolymer herzustellen und durch ein Verbundverfahren ohne zusätzliches Dichtungsmaterial zusammenzufügen. Durch diese Methode kann zwar auf separate Elastomerdichtungen verzichtet werden, die Materialauswahl für den Brennstoffzellenaufbau wird jedoch stark eingeschränkt.

Es ist die Aufgabe der Erfindung, eine wirksame und einfach zu fertigende Dichtungsanordnung für Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzellen mit Verteilerplatten aus einem elastischen, plastisch verformbaren und elektrisch leitfähigen Material zu schaffen.

Die Aufgabe wird erfindungsgemäß durch die kennzeichnenden Merkmale des Patentanspruchs 1 gelöst.

Die Integration der Dichtung in die Verteilerplatte bietet verschiedene Vorteile. Zum einen sind die thermomechanischen Eigenschaften des Dichtungsmaterials und der Verteilerplatte identisch und somit hinsichtlich einer Wärmeausdehnung unkritisch. Außerdem kann die Herstellung der Verteilerplatten und die Ausbildung der Dichtung in einem gemeinsamen Herstellprozeß erfolgen, was eine Reduzierung der Herstellkosten zur Folge hat. Schließlich entfällt der Aufwand für die Montage und genaue Justierung der Dichtung.

Im folgenden wird der Aufbau einer erfindungsgemäßen Vorrichtung anhand einer Zeichnung näher erläutert, wobei

Fig. 1 den prinzipiellen Aufbau einer Einzelzelle einer PEM-Brennstoffzelle,

Fig. 2 die Verteilerplatte aus Fig. 1,

Fig. 3 schematisch eine Verteilerplatte mit Dichtungsanordnung gemäß dem Stand der Technik im Schnitt und

Fig. 4 schematisch eine Verteilerplatte mit integrierter Dichtung, ebenfalls im Schnitt, zeigt.

In Fig. 1 ist eine insgesamt mit 1 bezeichnete Einzelzelle einer nicht näher dargestellten Brennstoffzelle gezeigt. Es handelt sich hierbei um eine Brennstoffzelle mit einer Polymerelektrolytmembran 2, im folgenden kurz als PEM-Brennstoffzelle bezeichnet. Die genaue Funktionsweise einer PEM-Brennstoffzelle ist beispielsweise aus dem angegebenen Stand der Technik bekannt und wird daher im folgenden nur noch kurz beschrieben. In solchen PEM-Brennstoffzellen wird aus Wasserstoff und Sauerstoff elektrischer Strom erzeugt. Hierbei werden die Reaktionspartner nicht in direkten Kontakt gebracht, sondern werden an der Polymerelektrolytmembran 2 in einem kontrollierten elektrochemischen Prozeß umgesetzt. Als Reaktionsprodukt entsteht Wasser.

Die Polymerelektrolytmembran 2 ist zur Abnahme des elektrischen Stromes auf gegenüberliegenden Oberflächen jeweils mit einer leitfähigen Elektroden-schicht 3, 4 versehen. Zur Verbesserung der Reaktion kann zusätzlich eine Katalysatorschicht, vorzugsweise aus einem Platinmaterial, auf die Elektroden 3, 4 aufgebracht werden. Die Anordnung aus Polymerelektrolytmembran 2, Elektroden 3, 4 und Katalysatorschicht bilden insgesamt die sogenannte Membran-Elektroden-Anordnung 5. Zur Zufuhr der Reaktionsmedien zur Membran-Elektroden-Anordnung 5 werden Verteilerplatten 6, 7 vorgesehen. Auf den der Membran-Elektroden-Anordnung 5 zugewandten Oberflächen der Verteilerplatten 6, 7 sind Kanäle 8, 9 ausgebildet, wobei die der Kathode 3 zugeordneten Kanäle 9 zur Zufuhr von Sauerstoff beziehungsweise Luft und die der Anode 4 zugeordneten Kanäle 8 zur Zufuhr von Wasserstoff oder eines anderen Brenngases dienen.

Insbesondere bei aus vielen Einzelzellen 1 zusammengesetzten Brennstoffzellenstapeln werden zur Zufuhr der Reaktionsmedien zu den einzelnen Verteilerplatten 6, 7 und der Membran-Elektroden-Anordnung 5 Öffnungen 10—13 vorgesehen, wobei die Öffnungen 10, 11 zur Zu- beziehungsweise Abfuhr von Wasserstoff oder eines anderen Brenngases und die Öffnungen 12, 13 zur Zu- beziehungsweise Abfuhr von Sauerstoff beziehungsweise Luft dienen. Bei Brennstoffzellenstapeln können außerdem Kühlkanäle in den Verteilerplatten 6, 7 oder in separaten Kühlplatten vorgesehen werden. Diese sind jedoch zur Vereinfachung der Darstellung nicht eingezeichnet. Vorzugsweise werden hierbei sogenannte bipolare Verteilerplatten verwendet. Diese bipolaren Verteilerplatten weisen auf der einen Oberfläche Kanäle 9 für den Sauerstoff beziehungsweise Luft und auf der gegenüberliegenden Oberfläche Kanäle 8 für den Wasserstoff oder ein anderes Brenngas auf. Die Kühlkanäle sind im Kern dieser bipolaren Platten integriert.

Der Aufbau der Verteilerplatten wird nun anhand von Fig. 2, in der die Verteilerplatte 6 aus Fig. 1 nochmals vollständig gezeigt ist, näher beschrieben. Für die Wasserstoffversorgung der Membran-Elektroden-Anordnung 5 ist der Kanal 8 mit den Öffnungen 10 und 11 verbunden. Und zwar wird der Wasserstoff oder ein anderes Brenngas über die Öffnung 10 zugeführt, anschließend mit Hilfe des Kanals 8 über die gesamte

Oberfläche der Membran-Elektroden-Anordnung 5 verteilt und schließlich über die Öffnung 11 wieder abgeführt. Bei einem Brennstoffzellenstapel werden die Öffnungen 10—13 seriell durchströmt, wobei jeweils Teilströme aus den Zuführungen 10, 12 entnommen und entsprechend in die Abführung 11, 13 wieder abgegeben werden. Um ein Austreten des Wasserstoffs beziehungsweise des Brenngases zu verhindern, ist entlang des äußeren Randes der Verteilerplatte 6 eine Dichtung 14 vorgesehen. Diese Dichtung 14 schließt beim Zusammenbau der Brennstoffzelle gasdicht mit der Membran-Elektroden-Anordnung 5 ab, so daß zwischen Membran-Elektroden-Anordnung 5 und Verteilerplatte 6 ein Wasserstoffraum ausgebildet wird, der sich über die gesamte Membranoberfläche erstreckt. Um zu verhindern, daß zusätzlich Sauerstoff beziehungsweise Luft aus den Öffnungen 12, 13 in den Wasserstoffraum gelangen kann, sind zusätzlich auch entlang dieser Öffnungen 12, 13 kreisförmige Dichtungen 14 vorgesehen.

Die genaue Ausbildung dieser Dichtungen 14 wird im folgenden anhand der Fig. 3 und 4, die jeweils einen Schnitt durch die Verteilerplatte 6 gemäß Fig. 2 zeigen, näher beschrieben, wobei in Fig. 3 die Dichtungsanordnung gemäß dem Stand der Technik und in Fig. 4 die erfindungsgemäße Anordnung dargestellt ist. Bei herkömmlichen Anordnungen wird für die Dichtung 14 eine entsprechende Ausnehmung 15 in der Verteilerplatte 6 vorgesehen. In diese Ausnehmung 15 wird dann anschließend eine vorzugsweise aus einem Elastomermaterial gefertigte Dichtungsfolie eingelegt oder entsprechende Dichtungsmasse in anderer Form eingebracht. Diese Dichtung 14 liegt dann nach der Montage gasdicht an der zugehörigen Membran-Elektroden-Anordnung 5 an.

Diese Art von Dichtungsanordnung weist jedoch einige Nachteile auf. Zum einen können sich die Dichtung 14 und die Verteilerplatte 6 aufgrund von unterschiedlichen thermomechanischen Eigenschaften bei einer Temperaturveränderung unterschiedlich stark ausdehnen, so daß es im Betrieb der Brennstoffzelle zu Undichtigkeiten kommen kann. Außerdem ist bei der Montage der Brennstoffzelle ein zusätzlicher Montageschritt notwendig, da entweder die Dichtungsmasse in die Vertiefung 15 eingebracht oder aber die vorgefertigte Dichtungsfolie in die Vertiefung eingelegt werden muß. Im zweiten Fall muß die Dichtungsfolie sogar in einem separaten Herstellprozeß vorgefertigt werden. Außerdem muß bei der Montage auf eine exakte Ausrichtung der Dichtung 14 in Bezug auf die Verteilerplatte 6 geachtet werden.

Um all diese Nachteile zu umgehen wird nun eine Anordnung, wie sie in Fig. 4 gezeigt ist, vorgeschlagen. Hierbei wird anstelle einer separaten Dichtung 14 eine in die Verteilerplatte 6 integrierte Erhebung 16 als Dichtung verwendet. Wie in Versuchen bereits ermittelt wurde, ist auch mit einer solchen Anordnung ein flüssigkeits- beziehungsweise gasdichter Abschluß zwischen der Oberfläche der Erhebung 16 und der Membran-Elektroden-Anordnung 5 unter den in einer PEM-Brennstoffzelle herrschenden Bedingungen möglich. Bei der Herstellung der Verteilerplatten 6 muß zu diesem Zweck lediglich an den gewünschten Stellen anstelle einer Dichtung 14 eine in die Verteilerplatte integrierte Erhebung 16 angeordnet werden.

Da solche Verteilerplatten 6, die vorzugsweise aus einem elastischen und zugleich plastisch verformbaren Graphitmaterial bestehen und aus einem Ausgangsmaterial mit geringer spezifischer Dichte durch Verdich-

tungs- und Strukturierungsprozesse hergestellt werden, muß hierbei lediglich am Prägewerkzeug zusätzlich zu den Stegen, die für die Ausformung der Kanäle 8 benötigt werden, entsprechende Nuten mit geeigneter Form zur Ausbildung der Erhebungen 16 vorgesehen werden. Das heißt, anstelle des bisherigen Herstell- und Montagevorgangs muß lediglich das Prägewerkzeug modifiziert werden. Hierzu werden am Prägewerkzeug die gewünschten Erhebungen und Kanalstrukturen in inverser Anordnung ausgebildet. Obwohl im Ausführungsbeispiel eine rechteckförmige Erhebung 16 dargestellt ist können selbstverständlich auch andere Formen für die Erhebung 16 gewählt werden. Auch die Lage der Erhebungen 16 auf der Verteilerplatte 6 in Fig. 2 stellt lediglich ein prinzipielles Ausführungsbeispiel dar. Die Erfindung soll daher nicht auf das gezeigte Ausführungsform beschränkt werden.

Da bei der erfindungsgemäßen Anordnung die Verteilerplatte 6 und die Dichtung 14 aus dem selben Material gefertigt sind und somit identische thermomechanische Eigenschaften aufweisen kann es bei einer Temperaturänderung des System zu keinen Schwierigkeiten durch unterschiedliches Ausdehnungsverhalten kommen. Weitere Vorteile weist diese Anordnung bezüglich der Herstellung auf. Da die Erhebungen 16 direkt beim Prägevorgang der Verteilerplatte 6 ausgeformt werden kann entfällt sowohl ein zusätzlicher Herstell- als auch ein nachträglicher Montagevorgang.

Obwohl die Anordnung der Erhebungen 16 lediglich anhand der Verteilerplatte 6 für den Wasserstoff beziehungsweise des Brenngases beschrieben wurde können solche erfindungsgemäßen Dichtungsanordnungen auf entsprechende Weise für die Verteilerplatte 7 für den Sauerstoff beziehungsweise die Luft und/oder auf andere Komponenten, beispielsweise separate Kühlplatten, in einem Brennstoffzellenstapel angewendet werden. Allgemein ausgedrückt können durch die in die Folien aus einem elastischen, plastisch verformbaren und elektrisch leitfähigen Material integrierten Erhebungen 16 beliebige Flüssigkeitsbeziehungsweise Gasräume zwischen dieser Folie und benachbarten Platten oder Folien abgedichtet werden. Insbesondere ist es möglich, die Flüssigkeits- beziehungsweise Gasräume in den Verteilerplatten 6, 7 gegen andere Graphitoberflächen abzudichten. Kennzeichnend für das für die Verteilerplatten 6, 7 verwendete Material ist die Eigenschaft, elektrisch leitfähig und plastisch verformbar zu sein und trotzdem elastische Eigenschaften zu behalten. Ein Ausführungsbeispiel für ein solches Material sind Graphitfolien mit einer Dichte von 0,2—1,8 g/cm<sup>3</sup>. Die erfindungsgemäße Dichtungsanordnung kann selbstverständlich auch mit der herkömmlichen Dichtungstechnik kombiniert werden, so daß Elastomerdichtungen und integrierte Erhebungen ergänzend eingesetzt werden.

#### Patentansprüche

1. Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzelle mit mindestens einer Membran-Elektroden-Anordnung, die aus einer auf gegenüberliegenden Seiten mit einer leitenden Elektrodenschicht versehenen Polymerelektrolytmembran besteht, und mit Verteilerplatten aus einem elastischen, plastisch verformbaren und elektrisch leitfähigen Material, die integrierte Kanäle zur Zubeziehungsweise Abfuhr von Reaktions- und/oder Kühlmedien aufweisen, wobei zur Abdichtung der einzelnen Gas- bezie-

hungsweise Flüssigkeitsräume eine Dichtung zwischen den Verteilerplatten und der Membran-Elektroden-Anordnung vorgesehen ist, dadurch gekennzeichnet, daß die Dichtung (14) durch eine in die Verteilerplatte (6, 7) integrierte Erhebung (16) 5 ausgebildet ist.

2. Vorrichtung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Verteilerplatte (6, 7) als Graphitfolie mit einer Dichte von 0,2—1,8 g/cm<sup>3</sup> ausgebildet ist. 10

3. Vorrichtung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Verteilerplatte (6, 7) mit Hilfe von Dichtungen (14) zusätzlich auch gegen andere Bestandteile der Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzelle abgedichtet ist. 15

4. Vorrichtung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß zusätzlich zu den Dichtungen (16) auch Elastomerdichtungen (14) vorgesehen sind.

5. Verfahren zur Herstellung einer Verteilerplatte für eine Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzelle gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Verteilerplatte (6, 7) durch Prägen aus einem elastischen, plastisch verformbaren und elektrisch leitfähigen Material hergestellt wird, wobei das Prägewerkzeug Stege zur Ausbildung der Gas- beziehungsweise Flüssigkeitskanäle (8) und Vertiefungen zur Ausbildung der Erhebungen (16) aufweist. 20 25

---

Hierzu 2 Seite(n) Zeichnungen

---

30

35

40

45

50

55

60

65

Fig. 1

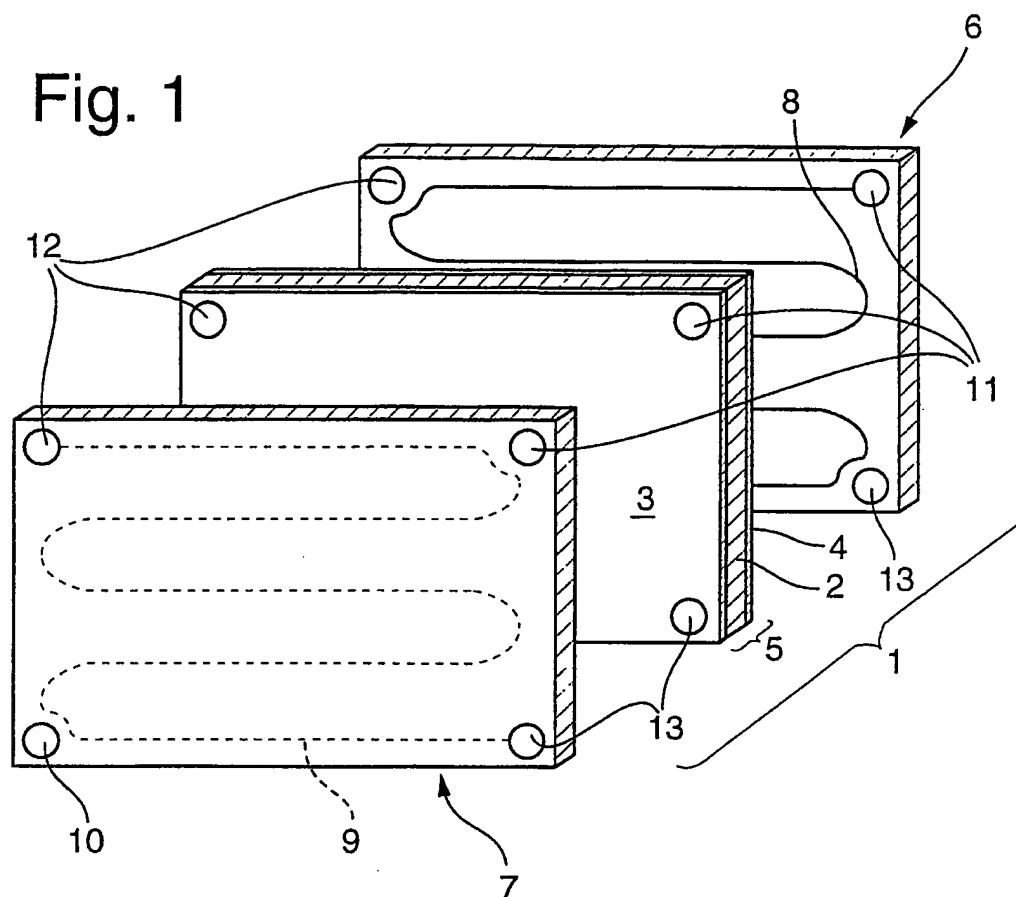


Fig. 2

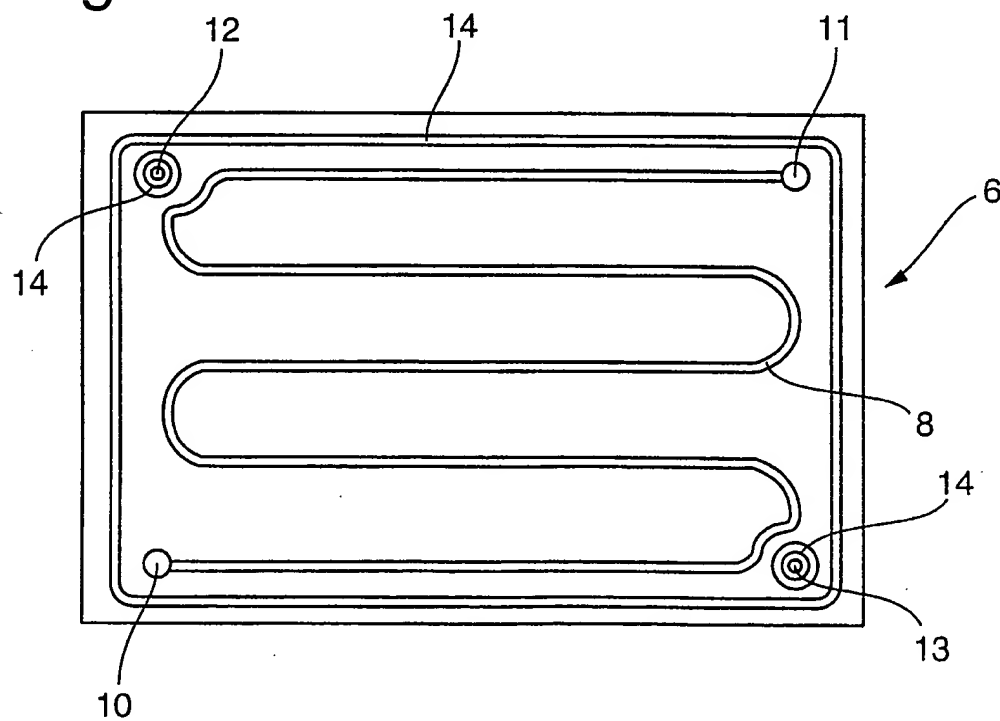


Fig. 3

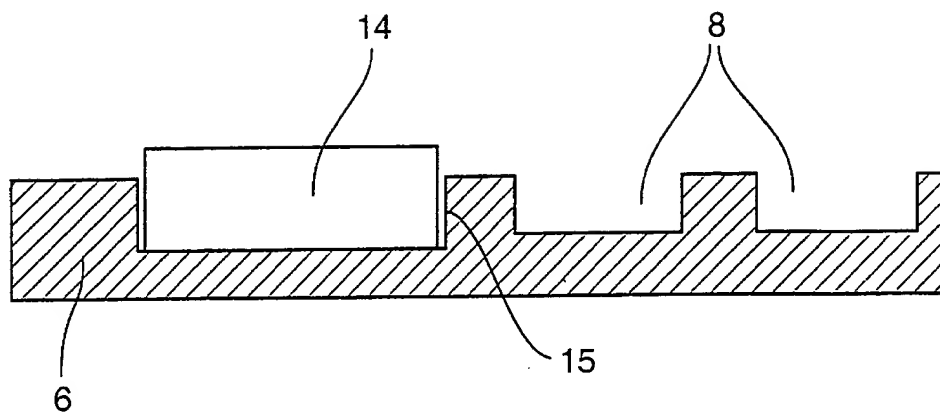


Fig. 4

